

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO,



Europäisches
Patentamt

European
Patent Office

Office européen
des brevets

EP00/5128

REC'D 07 JUL 2000

WIPO

PCT

4
Bescheinigung

Certificate

Attestation

Die angehefteten Unterla-
gen stimmen mit der
ursprünglich eingereichten
Fassung der auf dem näch-
sten Blatt bezeichneten
europäischen Patentanmel-
dung überein.

The attached documents
are exact copies of the
European patent application
described on the following
page, as originally filed.

Les documents fixés à
cette attestation sont
conformes à la version
initialement déposée de
la demande de brevet
européen spécifiée à la
page suivante.

Patentanmeldung Nr. Patent application No. Demande de brevet n°

99830351.5

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

Der Präsident des Europäischen Patentamts;
Im Auftrag

For the President of the European Patent Office

Le Président de l'Office européen des brevets
p.o.

I.L.C. HATTEN-HECKMAN

DEN HAAG, DEN
THE HAGUE, 04/07/00
LA HAYE, LE

THIS PAGE BLANK (USPTO)



Europäisches
Patentamt

European
Patent Office

Office européen
des brevets

Blatt 2 der Bescheinigung
Sheet 2 of the certificate
Page 2 de l'attestation

Anmeldung Nr.:
Application no.: 99830351.5
Demande n°:

Anmeldetag:
Date of filing: 04/06/99
Date de dépôt:

Anmelder:
Applicant(s):
Demandeur(s):
Johnson Controls Automotive S.r.l.
20063 Cernusco S/N (MI)
ITALY

Bezeichnung der Erfindung:
Title of the invention:
Titre de l'invention:

A functionalized thermoplastic polymer composition and a process for its preparation

In Anspruch genommene Priorität(en) / Priority(ies) claimed / Priorité(s) revendiquée(s)

Staat:
State:
Pays:

Tag:
Date:
Date:

Aktenzeichen:
File no.
Numéro de dépôt:

Internationale Patentklassifikation:
International Patent classification:
Classification internationale des brevets:

C08L23/10

Am Anmeldetag benannte Vertragsstaaten:
Contracting states designated at date of filing: AT/BE/CH/CY/DE/DK/ES/FI/FR/GB/GR/IE/IT/LI/LU/MC/NL/PT/SE
Etats contractants désignés lors du dépôt:

Bemerkungen:
Remarks:
Remarques:

See for Italian title page 1 of the description

THIS PAGE BLANK (USPTO)

La presente invenzione riguarda una formulazione polimerica termoplastica funzionalizzata ed a base poliolefinica, stampabile ad iniezione, con una buona mano (soft-touch), provvista di una elevata resistenza al graffio, ed atta ad essere sottoposta a lavorazioni di finitura quali saldatura, incollatura e verniciatura. In particolare, la formulazione polimerica secondo l'invenzione è adatta all'utilizzo come materiale esterno, o pelle, in pannelli per interni auto.

L'invenzione concerne inoltre un procedimento per la preparazione della formulazione sopra menzionata.

Sono noti nella tecnica vari tipi di polimeri a base poliolefinica stampabili ad iniezione e provvisti di una buona mano (soft-touch). La domanda WO96/22327 descrive una formulazione polimerica adatta allo stampaggio ad iniezione comprendente 5-65% in peso di EP(D)M, 1-30% di polialchenileni e loro miscele, graffiati su una matrice di polipropilene. Questa formulazione presenta buona processabilità e ridotta appiccicosità, ma, come le altre formulazioni analoghe, ha scarsa resistenza al graffio e non è sottoponibile a processi di saldatura, incollatura e verniciatura.

Un altro problema presentato dalle formulazioni note è quello della loro processabilità.

Come sopra menzionato, questi materiali vengono utilizzati per produrre lo strato esterno di pelle in prodotti come ad esempio pannelli per interni auto; la superficie del pannello è relativamente estesa mentre lo spessore dello strato di pelle è molto ridotto. Il materiale utilizzato dovrebbe pertanto avere un'ottima

processabilità per potersi distribuire nello stampo evitando il formarsi di fronti di avanzamento (tiger-stripes) vale a dire le strisce o segni dovuti al differente comportamento reologico della matrice poliolefinica rispetto alla parte gommosa.

- 5 Le formulazioni note non soddisfano i requisiti sopra citati e danno prodotti con un elevato numero di fronti di avanzamento.

Si presenta quindi la necessità di avere formulazioni con le migliorate proprietà sopra citate.

- Tale scopo viene raggiunto per mezzo della presente invenzione
- 10 che concerne una formulazione polimerica termoplastica a base poliolefinica caratterizzata dal fatto di comprendere, in peso sul peso totale dei polimeri, 10-80% di polipropilene, 0-85% in peso di gomma EP(D)M, 0-40% di polibutadiene, e 0,5-60% di almeno un composto insaturo scelto fra copolimeri e terpolimeri etilene-vinil
- 15 acetato, NBR, copolimeri e terpolimeri etilene-estere acrilico e poliuretani polibutadienici o loro precursori, la quantità totale di polibutadiene e composti insaturi essendo al massimo il 60% in peso. Secondo un aspetto preferenziale dell'invenzione, la formulazione contiene poliuretani polibutadienici ottenuti da precursori costituiti
- 20 da polibutadieni funzionalizzati -OH, -NCO, -COOH.

Secondo un ulteriore aspetto dell'invenzione, la formulazione contiene i precursori polibutadienici funzionalizzati sopra citati.

- Secondo un altro aspetto preferenziale, la formulazione comprende anche 5-30% di cellulosa in peso sul totale della
- 25 formulazione.

L'invenzione concerne inoltre una composizione per la

preparazione di una formulazione polimerica del tipo sopra descritto, caratterizzata secondo la rivendicazione 5.

L'invenzione concerne inoltre un procedimento per la produzione di una formulazione polimerica termoplastica, caratterizzato
5 secondo la rivendicazione 7.

L'invenzione concerne inoltre un elemento per interni auto provvisto di una superficie realizzata almeno in parte con un materiale la cui formulazione è del tipo sopra descritto. In una
realizzazione preferenziale, il prodotto presenta uno strato interno di
10 supporto ed uno strato esterno di pelle realizzato con la formulazione dell'invenzione.

La formulazione secondo la presente invenzione presenta numerosi vantaggi. In primo luogo lo strato di "pelle" ottenuto con la formulazione dell'invenzione presenta valori di resistenza al graffio
15 particolarmente elevati, pur mantenendo un'ottima mano e buone caratteristiche meccaniche.

La formulazione presenta un'eccellente processabilità che la rende perfettamente adatta sia per essere estrusa in una foglia piana, sia per lo stampaggio ad iniezione, ed in particolare per lo stampaggio
20 in coiniezione di prodotti in cui la formulazione secondo l'invenzione costituisce lo strato esterno o di "pelle".

Un ulteriore vantaggio è dato dal fatto che i prodotti ottenuti da un materiale che presenta la formulazione dell'invenzione possono essere sottoposti a fasi di rifinitura ed in particolare a verniciatura,
25 incollatura e saldatura, ad es. saldatura ad alta frequenza.

La formulazione polimerica termoplastica secondo l'invenzione

comprende, in peso sul peso totale dei polimeri (vale a dire escluso il peso di eventuali cariche), 10-80% di polipropilene, 0-40% di polibutadiene, 0-85% in peso di EP(D)M e 0,5-60% di un composto insaturo scelto fra copolimeri e terpolimeri etilene-vinil acetato (ad es. EVA), NBR (gomma nitrile-butadiene), copolimeri e terpolimeri etilene-estere acrilico (ad es. EMA, EBA), e poliuretani polibutadienici o loro precursori.

La quantità totale di composti insaturi (cioè EVA etc., NBR, EMA, EBA etc. e poliuretano polibutadienico) e di polibutadiene è minore o uguale al 60% in peso dei polimeri. La gomma EP(D)M ed il polibutadiene sono parzialmente reticolati e graffiati sul polipropilene.

Con precursori dei poliuretani polibutadienici si vogliono indicare polibutadieni funzionalizzati con gruppi terminali scelti fra -NCO, -OH e -COOH.

Polipropileni adatti all'uso nell'invenzione sono ad esempio i polimeri e copolimeri del propilene con indice isotattico superiore a 0.1%, come i copolimeri di propilene con una o più alfa-olefine aventi 2-10 atomi di carbonio, nonché formulazioni di polipropilene ottenute con polimerizzazione sequenziale di polipropilene e di sue miscele con etilene e/o alfa-olefine. I (co)polimeri di propilene adatti hanno un MFI (Melt Flow Index) che può variare in un ampio intervallo e che è preferibilmente compreso tra 0.1 e 60 a 230°C/21.6 N (ASTM 1238). Esempi di polipropilene adatti sono quelli reperibili commercialmente con il nome DAPLEN® e le sigle DS10, US105A, CHC3007, FSC1012, e USC 1012, tutti della ditta Borealis.

Preferibilmente il polipropilene è presente nell'intervallo tra 15 e 50 %.

Le gomme EP(D)M adatte all'uso nella presente invenzione sono gomme o polimeri EP(D)M e loro analoghi; essi sono noti nella
5 tecnica e sono reperibili commercialmente. Esempi di polimeri EP(D)M adatti sono quelli reperibili commercialmente con il nome DUTRAL ®, della Enichem Elastomeri; analoghi esempi noti dei polimeri EP(D)M sono copolimeri random aventi contenuto di amorfo superiore al 50% in peso, quali ad esempio copolimeri C₂-C₈
10 tipo ENGAGE ®, della Du Pont Dow Elastomers. Le gomme EP(D)M sono di preferenza olio estese. Olii adatti per l'estensione sono noti nella tecnica e reperibili in commercio, come ad esempio olii naftenici e paraffinici. La quantità di olio è in genere tra il 40 ed il 60% in peso della gomma e preferibilmente circa il 50% in peso.

15 Preferibilmente la quantità di gomma EP(D)M presente è 40-60% se olio estesa o 20-50% se secca.

Polibutadiene preferenziale, utilizzabile nell'invenzione, è quello con contenuto di almeno il 20% di struttura 1,2. Un esempio di polibutadiene adatto è quello noto come Lithene PH ® della
20 Revertex Ltd. Preferibilmente il polibutadiene è presente nell'intervallo tra 0.5 % e 10%.

Copolimeri e terpolimeri etilene-vinil acetato adatti sono quelli con contenuto in vinil acetato compreso nell'intervallo tra 6% e 26% in peso e preferibilmente tra 9% e 18% in peso. Un esempio di
25 copolimeri etilene-vinil acetato sono quelli EVA, ad esempio quello noto come Escorene FL909, della Exxon. Terpolimeri adatti sono

quelli etilene-vinil acetato-anidride maleica, ad esempio quello commercializzato con il nome OREVAC della ELF ATOCHEM. Preferibilmente la quantità di EVA e terpolimeri presente è compresa nell'intervallo tra 10% e 25%.

- 5 Polimeri NBR adatti sono copolimeri butadiene-acrilonitrile con contenuto di acrilonitrile compreso nell'intervallo 25-35%. Un esempio di polimero NBR adatto è quello noto come CHEMIGUM P86F della Goodyear, avente contenuto di acrilonitrile compreso tra 30,5 e 33,5%.
- 10 Copolimeri etilene-estere acrilico adatti sono copolimeri random etilene-estere acrilico come EMA (etilene-metil acrilato) ed EBA (etilene-butil acrilato) con contenuto di acrilato compreso nell'intervallo tra 6 e 22% in peso. Copolimeri di questo tipo sono commercializzati con il nome LOTRYL dalla ELF ATOCHEM.
- 15 polimeri acrilati adatti sono terpolimeri etilene-estere acrilico-anidride maleica (con contenuto di acrilato compreso nell'intervallo 6-22% in peso) in commercio sotto il nome LOTADER della ELF ATOCHEM.

- Polimeri poliuretatici adatti sono quelli insaturi, a base
- 20 polibutadienica, vale a dire polimeri ottenibili per reazione di polibutadieni funzionalizzati con gruppi terminali isocianici e ossidrilici o acidi; esempi di questi prepolimeri sono riportati qui di seguito.

- Secondo l'invenzione, oltre ai poliuretani polibutadienici si possono
- 25 utilizzare anche i loro precursori, vale a dire polibutadieni provvisti di gruppi terminali funzionali scelti fra -OH, -NCO, -COOH. Tali

precursori possono anche essere utilizzati da soli, al posto degli altri composti insaturi citati.

Si ritiene che questi polibutadieni funzionalizzati, così come gli altri composti insaturi (poliuretani polibutadienici, EVA, NBR), si comportino in modo analogo alle gomme EP(D)M ed al polibutadiene, vale a dire che essi reticolino in parte e vengano graffiati sul polipropilene durante il processo di produzione della formulazione mediante vis breaking. In tal modo si riesce a rendere compatibili polimeri (polipropilene e poliuretano) che di per sè sono incompatibili e si ottiene una formulazione polimerica - vale a dire un materiale - provvisto di gruppi polari che lo rendono verniciabile, saldabile ed incollabile. Preferibilmente il poliuretano polibutadienico od i suoi precursori sono presenti nell'intervallo tra 10% e 45%.

La quantità totale di composti insaturi, vale a dire polibutadiene, EVA, terpolimeri EVA, NBR, copolimeri e terpolimeri etilene-estere acrilico, poliuretani e precursori (polibutadieni con gruppi funzionali), è pari al massimo al 60% in peso.

In una realizzazione dell'invenzione la composizione che deve essere sottoposta ad estrusione reattiva (vis-breaking) comprende sia polibutadiene funzionalizzato con gruppi ossidrilici che polibutadiene funzionalizzato con gruppi isocianici. Si ritiene che durante la reazione di visbreaking i prepolimeri polibutadienici reagiscano tra di loro a dare un poliuretano graffiato sul polipropilene.

In un'altra realizzazione, si usa un poliuretano polibutadienico

realizzato in precedenza a partire da miscele dei seguenti composti: diisocianati, inclusi polibutadieni funzionalizzati con gruppi terminali -NCO, difenilmetano diisocianato (MDI), toluendiisocianato (TDI) e dioli quali butandiolo, esandiolo, polibutadieni funzionalizzati con gruppi terminali ossidrilici.

Precursori poliuretani del tipo sopra descritto, adatti per la presente invenzione sono ad esempio quelli reperibili in commercio con il nome KRASOL ®, LBD e LBH, della KAUCUK (Repubblica Ceca).

- 10 Un esempio di sintesi di un poliuretano polibutadienico a partire da un polibutadiene isocianato e due tipi di dioli, un esandiolo e un polibutadiene ossidrilato, è riportato negli esempi seguenti.

Una realizzazione preferenziale dell'invenzione prevede la presenza di 5-30% (in peso sul totale della formulazione) di cellulosa.

- 15 Cellulosa adatta allo scopo è quella pura o sostanzialmente pura, come ad esempio quella reperibile in commercio con il nome ARBOCELL ZZ600 e BEM 600 della JRS (Germania).

- Preferibilmente si utilizza dal 10% al 20% di cellulosa. Si è constatato sorprendentemente che la presenza di cellulosa si traduce in un
20 rilevante aumento della resistenza al graffio del prodotto ed in un miglioramento delle proprietà meccaniche, senza che questo influenzi negativamente le caratteristiche di soft touch del prodotto.

- L'invenzione protegge inoltre anche la composizione per realizzare
25 una formulazione del tipo sopra descritto. Con il termine formulazione si indica il materiale, ad esempio in granuli, polvere o

pellets, in cui gomme e composti insaturi sono già stati trattati per estrusione reattiva (vis-breaking) e presumibilmente sono parzialmente reticolati e graffiati sul polipropilene. Il materiale della formulazione è pronto per essere stampato e già dotato delle
5 caratteristiche desiderate.

Con il termine composizione si intende la miscela di polimeri ed additivi prima della loro lavorazione mediante estrusione reattiva a dare la formulazione dell'invenzione.

Secondo la presente invenzione la composizione comprende, in
10 modo analogo a quanto sopra esposto, in peso sul peso totale dei polimeri, 10-80% di polipropilene, 0-85% in peso di una gomma EP(D)M, 0-40% di un polibutadiene, e 0,5-60% di almeno un composto insaturo scelto fra copolimeri e terpolimeri etilene-
vinilacetato, NBR, copolimeri e terpolimeri etilene-estere acrilico, e
15 poliuretani polibutadienici o loro precursori, dove la quantità totale di composti insaturi e polibutadiene è minore od uguale al 60% in peso.

Oltre a questi componenti, la composizione comprende inoltre 0.1-1.5% di un agente generatore di radicali alla temperatura di
20 lavorazione della composizione, cioè quando la composizione viene sottoposta a vis-breaking. I polimeri adatti sono quelli sopra elencati.

Agenti preferenziali in grado di generare radicali alla temperatura di lavorazione della composizione sono quelli perossidici, quali ad
25 esempio il dicumil perossido, ed il 2,5-bis(terz-butilperossi)-2,5-dimetil esano. Altri agenti adatti sono iniziatori non-perossidici come il 2,3-

dimetil-2,3-difenil esano ed il 2,3-dimetil-2,3-difenil butano. Tutti gli agenti generatori di radicali sono in grado di generare radicali, e quindi di iniziare una reticolazione, alla temperatura di lavorazione della composizione, vale a dire alla temperatura raggiunta dalla
5 composizione quando è stata portata allo stato fuso, miscelata e quindi estrusa.

Il procedimento per la produzione di una formulazione polimerica termoplastica secondo l'invenzione prevede infatti di mescolare (knead) allo stato fuso una composizione del tipo sopra descritto,
10 vale a dire contenente gli agenti generatori di radicali, ad una temperatura tale da attivare detti agenti generatori di radicali per creare una pluralità di siti attivi sulla catena polipropilenica. Si ottiene in tal modo una reticolazione almeno parziale delle gomme ed una maggiore o minore degradazione del
15 polipropilene. In questa fase, nota anche come "visbreaking" o "estrusione reattiva", il polibutadiene agisce come agente di graffaggio. Si presume che, analogamente, anche EVA e terpolimeri etilene-vinilacetato-anidride maleica, NBR, co e terpolimeri etilene-estere acrilico ed i poliuretani polibutadienici e
20 loro precursori si comportino come unità di graffaggio sul polipropilene. La composizione risultante darà un materiale con ottime caratteristiche meccaniche e di soft touch ed elevata resistenza al graffio.

La temperatura di lavorazione alla quale avviene questo processo
25 di estrusione reattiva è in genere compreso nell'intervallo tra 200 e 220 °C.

Allo scopo di evitare fenomeni di termodegradazione dei componenti della miscela, in particolare durante l'estrusione reattiva sopra descritta, antiossidanti e stabilizzanti saranno presenti in quantità usuali, ad esempio tra 0.1 e 1.5% in peso sul peso totale
5 dei polimeri. Questi additivi sono noti nella tecnica; esempi di additivi adatti sono fenoli impediti stericamente, ammine secondarie, tioeteri, fosfiti e fosfoniti.

Preferibilmente la quantità di cariche presenti è nell'intervallo 5-30%. Oltre alla cellulosa sopra descritta sono utilizzabili altre cariche
10 vegetali, nonché additivi e cariche come ad esempio carbonati, silice e silicati come la wollastonite, talco, caolino e coloranti.

L'invenzione verrà ulteriormente illustrata con riferimento ai seguenti esempi.

Esempio A - sintesi del poliuretano polbutadienico

75.2 parti di KRASOL LBD, un polibutadiene con gruppi terminali isocianici della KAUCUK (Rep. Ceca), 22.55 parti di KRASOL LBH 3000, un polibutadiene con gruppi terminali ossidrilici e 2,25 parti di 2-etil-1,3-esandiolo vengono miscelate e fatte reagire alla temperatura di 80°C per 48 ore. Si ottiene un solido che viene macinato per
20 essere utilizzato nell'esempio 4.

Esempio 1

*44.8 parti di DUTRAL CS 9615 (un polimero EPDM olio esteso al 45%), 35.8 parti di Polipropilene DAPLEN FSC 1012 (MFI 25 a 230°C/5Kg), 17 parti di EVA ESCORENE FL 909 (contenuto di vinil acetato pari a
25 9.4%) della EXXON, 0.4 parti di un agente generatore di radicali perossidico di(t-butil)perossido-diisopropilbenzene supportato al 40% su inerte, 0.9 parti di additivi antiossidanti, e 1.1 parti di*

polibutadiene LITHENE PH delle REVERTEX CHEMICALS

sono state mescolate a 180-220°C in un estrusore bivate corotante Maris Ø 133 L/D=40 e poi pellettizzate.

Esempio 2

- 5 48 parti di DUTRAL CS 9615 (un polimero EPDM olio esteso al 45%),
37.4 parti di Polipropilene DAPLEN FSC 1012 (MFI 25 a 230°C/5Kg), 10
parti di CHEMIGUM P86F della GOODYEAR (una gomma butadiene-
acrilonitrile), 0.4 parti di un agente generatore di radicali
perossidico di(t-butil)perossido-diisopropilbenzene supportato al 40%
10 su inerte, 0.9 parti di additivi antiossidanti, e 1.3 parti di
polibutadiene LITHENE PH delle REVERTEX CHEMICALS
*sono state mescolate a 180-220°C in un estrusore bivate corotante
Maris Ø 133 L/D=40 e poi pellettizzate*

Esempio 3

- 15 52 parti di DUTRAL CS 9615 (un polimero EPDM di olio esteso al 45%),
42 parti di Polipropilene DAPLEN FSC 1012 (MFI 25 a 230°C/5Kg), 0.4
parti di un agente generatore di radicali perossidico di(t-
butil)perossido-diisopropilbenzene supportato al 40% su inerte, 0.4
parti di additivi antiossidanti, 1 parte di polibutadiene LITHENE PH
20 delle REVERTEX CHEMICALS, 4 parti di KRASOL LBD (un polibutadiene
con gruppi terminali isocianici) e 0.2 parti di 2-etil-1,3-esandiolo
(Aldrich)
*sono state mescolate a 180-220°C in un estrusore bivate corotante
Maris Ø 133 L/D=40 e poi pellettizzate.*

25 *Esempio 4*

48 parti di DUTRAL CS 9615 (un polimero EPDM olio esteso al 45%), 40
parti di Polipropilene DAPLEN FSC 1012 (MFI 25 a 230°C/5Kg), 10

parti di Poliuretano polibutadienico sintetizzato come sopra descritto, 0.4 parti di un agente generatore di radicali perossidico di(t-butil)perossido-diisopropilbenzene supportato al 40% su inerte, 0.7 parti di additivi antiossidanti e 0.9 parti di polibutadiene LITHENE

5 PH delle REVERTEX CHEMICALS

sono state mescolate a 180-220°C in un estrusore bivate corotante Maris Ø 133 L/D=40 e poi pellettizzate.

La seguente tabella riporta i valori di alcune caratteristiche meccaniche delle formulazioni ottenute.

10 Tabella 1

	Esempio 1	Esempio 2	Esempio 3	Esempio 4
MFI				
a 230°/21 6N	8.8	5.5	14.6	9.5
Shore D	32	25	25	23

15 I materiali ottenuti sono stati stampati mediante tecnica di stampaggio in coiniezione su pressa Mir da 1850 tonnellate alla temperatura di circa 220°C, a dare prodotti in cui la formulazione costituisce lo strato esterno di pelle.

I materiali presentano una buona processabilità e distribuzione dei materiali, nonché riduzione del fogging e miglioramento della resistenza al graffio.

20 Si osserva inoltre una consistente riduzione dei fronti di avanzamento (tiger-stripes) dovuti al differente comportamento reologico della matrice poliolefinica rispetto alla parte gommosa.

La formulazione polimerica così ottenuta è particolarmente adatta per la produzione di elementi per interni di autoveicoli, dove con il termine "componenti" si intendono tutti i componenti per auto noti,

quali pannelli, plance, consolle, e rivestimenti in genere.

RIVENDICAZIONI

1. Formulazione polimerica termoplastica a base poliolefinica caratterizzata dal fatto di comprendere, in peso sul peso totale dei polimeri, 10-80% di polipropilene, 0-85% in peso di gomma EP(D)M,
5 0-40% di polibutadiene, e 0,5-60% di almeno un composto insaturo scelto fra copolimeri e terpolimeri etilene-vinil acetato, NBR, copolimeri e terpolimeri etilene-estere acrilico, e poliuretani polibutadienici o loro precursori, o loro miscele, la quantità totale di polibutadiene e composti insaturi essendo al massimo il 60% in
10 peso.
2. Formulazione secondo la rivendicazione 1, in cui detti precursori di poliuretani polibutadienici sono uno o più polibutadieni provvisti di gruppi terminali scelti fra -NCO, -OH, -COOH.
3. Formulazione secondo la rivendicazione 1 o 2, in cui dette
15 gomme EP(D)M sono estese con olio al 30-60% in peso.
4. Formulazione secondo una delle rivendicazioni precedenti, caratterizzata dal fatto che detto poliuretano polibutadienico è ottenuto dalla reazione di un polibutadiene con gruppo -NCO con un polibutadiene avente gruppo terminale scelto fra -OH e -COOH
20 o con un diolo noto nella tecnica.
5. Composizione per la preparazione di una formulazione secondo una delle rivendicazioni precedenti, caratterizzata dal fatto di comprendere in peso sul peso totale dei polimeri, 10-80% di una poliolefina scelta fra polietilene e polipropilene, 0-85% in peso di
25 una gomma EP(D)M, 0-40% di un polibutadiene, 0,5-60% di almeno un composto insaturo scelto fra copolimeri e terpolimeri etilene-vinil

acetato, NBR, copolimeri e terpolimeri etilene- estere acrilico, e poliuretani polibutadienici o loro precursori e 0.1-1.5% di un agente generatore di radicali alla temperatura di lavorazione della composizione, la quantità totale di polibutadiene e di composti insaturi essendo al massimo il 60% in peso.

6. Composizione secondo la rivendicazione 5, comprendente 0,5-20 % di almeno un polibutadiene provvisto di gruppi terminali scelti fra -NCO, -OH, -COOH.

7. Procedimento per la produzione di una formulazione polimerica termoplastica, caratterizzato dal fatto di mescolare una composizione comprendente, in peso sul peso totale dei polimeri, 10-80% di una poliolefina scelta fra polietilene e polipropilene, 0-85% in peso di una gomma EP(D)M, 0-40% di un polibutadiene, 0,5-60% di almeno un composto insaturo scelto fra copolimeri e terpolimeri etilene-vinil acetato, NBR, copolimeri e terpolimeri etilene-estere acrilico, e poliuretani polibutadienici o loro precursori, la quantità totale di polibutadiene e di composti insaturi essendo al massimo il 60% in peso, e 0,1-0,6% di almeno un agente generatore di radicali ad una temperatura tale da attivare detto agente generatore di radicali per effettuare una parziale reticolazione di almeno alcuni dei polimeri presenti.

8. Procedimento secondo la rivendicazione 7, in cui si utilizza come composto insaturo almeno un polibutadiene provvisto di gruppi terminali scelti fra -OH, -NCO e -COOH.

9. Procedimento secondo la rivendicazione 7 od 8, in cui detto poliuretano polibutadienico viene preparato per reazione di

polibutadieni funzionalizzati -OH, -COOH e -NCO.

10. Procedimento per la preparazione di un poliuretano insaturo a base polibutadienica, in cui un prepolimero polibutadienico provvisto di gruppi terminali isocianato viene fatto reagire con uno
5 o più dioli.

11. Procedimento per la preparazione di un poliuretano insaturo a base polibutadienica, in cui un prepolimero polibutadienico provvisto di gruppi terminali ossidrilici viene fatto reagire con uno o
più diisocianati.

- 10 12. Elemento per interni di autoveicoli, caratterizzato dal fatto di avere una superficie esterna realizzata almeno in parte con un materiale termoplastico avente una formulazione secondo una delle rivendicazioni da 1 a 4.

13. Elemento per interni di autoveicoli secondo la rivendicazione 12,
15 comprendente uno strato interno di supporto ed uno strato esterno di pelle, detto strato esterno di pelle corrispondendo a detta superficie.

RIASSUNTO

Una formulazione termoplastica a base poliolefinica in grado di dare prodotti con soft-touch e funzionalizzati per essere saldabili e verniciabili comprende, in peso sul peso totale dei polimeri, 10-80% di polipropilene, 0-85% in peso di gomma EP(D)M, 0-40% di polibutadiene, e 0,5-60% di almeno un composto insaturo scelto fra: copolimeri e terpolimeri etilene-vinil acetato, NBR, copolimeri e terpolimeri etilene-estere acrilico, e poliuretani polibutadienici o loro precursori, o loro miscele; con la condizione che la quantità totale di polibutadiene e composti insaturi è pari od inferiore al 60% in peso. La formulazione viene preparata per vis-breaking dei composti sopra elencati con generatori di radicali.